

B5

*** NOTICES ***

JP0 and NCIP1 are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

Bibliography

(19) [Publication country] Japan Patent Office (JP)
(12) [Kind of official gazette] Open patent official report (A)
(11) [Publication No.] JP,8-45517,A
(43) [Date of Publication] February 16, Heisei 8 (1996)
(54) [Title of the Invention] The seal structure for polyelectrolyte mold fuel cells, and its manufacture approach
(51) [International Patent Classification (6th Edition)]

H01M 8/02 E 9444-4K
S 9444-4K
8/10 9444-4K

[Request for Examination] Un-asking.

[The number of claims] 13

[Mode of Application] FD

[Number of Pages] 10

(21) [Application number] Japanese Patent Application No. 6-195965

(22) [Filing date] July 28, Heisei 6 (1994)

(71) [Applicant]

[Identification Number] 000217228

[Name] Tanaka Kikinzoku Kogyo, Inc.

[Address] 2-6-6, Nihombashi Kayaba-cho, Chuo-ku, Tokyo

(72) [Inventor(s)]

[Name] Sakairi Koichi

[Address] 2-73, Shimmachi, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken Inside of the Tanaka Kikinzoku Kogyo, Inc. ED pin center,large

(72) [Inventor(s)]

[Name] Tada Tomoyuki

[Address] 2-73, Shimmachi, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken Inside of the Tanaka Kikinzoku Kogyo, Inc. ED pin center,large

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

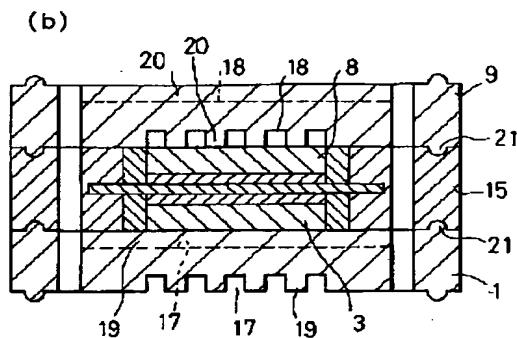
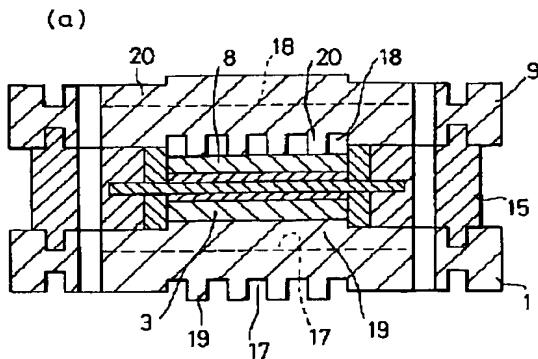
Epitome

(57) [Abstract]

[Objects of the Invention] While reducing the components mark when carrying out the laminating of the cel stack and being able to perform positive setting, also when thickness is thin, even if it can raise a mechanical strength and pressurizes gas further, the gas leak of the seal section is lost, and the seal structure for solid polymer electrolyte mold fuel cells which can improve an output, and its manufacture approach are offered.

[Elements of the Invention] Seal structure for polyelectrolyte mold fuel cells characterized by being unified so that a sealant may lap with the perimeter of a front face of the charge collector of 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector. The manufacture approach of the seal structure for polyelectrolyte mold fuel cells characterized for 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector by liquefied or unifying with a sealant using a sheet-like sealant.

[Translation done.]



[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by being unified so that a sealant may lap with the perimeter of the charge collector of 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector.

[Claim 2] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by being fabricated so that the thickness of the gas supply side which is not covered with the sealant of a charge collector may be thick compared with surrounding thickness and may become convex in the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells according to claim 1 with a sealant.

[Claim 3] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by being fabricated so that a part of thickness of a sealant may be thick compared with the thickness of the gas supply side of a charge collector and may become a concave at least in the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells according to claim 1 with a sealant.

[Claim 4] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by forming the manifold hole for carrying out distribution supply of the gas, and the hole for positioning at the time of a cel stack laminating in the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells claim 1, 2, or given in three with a sealant.

[Claim 5] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant with which a sealant is characterized by being a rubber-like elastic body or the rubber-like elastic body by which fiber strengthening was carried out in claims 1, 2, and 3 or the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells given in either of 4 with a sealant.

[Claim 6] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant with which a sealant is characterized by being a hard macromolecule or the hard macromolecule by which fiber strengthening was carried out in claims 1, 2, and 3 or the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells given in either of 4 with a sealant.

[Claim 7] Electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by forming the rubber-like elasticity object in a part of front face [at least] of a hard sealant in the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells according to claim 6 with a sealant.

[Claim 8] The manufacture approach of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by performing unification shaping processing after inserting 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector with the macromolecule sheet which has not carried out full hardening.

[Claim 9] The manufacture approach of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized for 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector by liquefied or unifying with a sealant using sheet-like adhesives or a sealant.

[Claim 10] The manufacture approach of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant characterized by putting between the metal mold which prepared the gap which pours in fluid-sealant material for 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector, and pouring in and hardening fluid-sealant material.

[Claim 11] The gas-seal approach of the polyelectrolyte mold fuel cell cel stack characterized by liquefied or performing postcure processing which concluded the cel stack using sheet-like adhesives or a sealant, and increasing and concluding a pressure further in case the laminating of the 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a

cathode catalyst bed, and a cathode charge collector is carried out with the cel stack plate which has a gas supply slot.

[Claim 12] The gas-seal approach of the polyelectrolyte mold fuel cell cel stack characterized by the thing of the part to which a cel stack plate contacts a sealant in the cel stack which carried out the laminating of the gas supply slot with the cel stack plate which it has in 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector for which concave or a convex slot is formed in part at least.

[Claim 13] The polyelectrolyte mold fuel cell cel stack which is the electrode layer complex with a sealant which has the manifold hole which carries out distribution supply of the gas, is a cel stack which consists of the electrode layer complex with a sealant with which the manifold which gas penetrates was formed in a part for the current-collection soma which does not lap with a sealant and ion exchange membrane, and the separator plate which has a manifold hole, and is characterized by to make the cross section of the charge collector thickness direction into the structure which gas passes.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the structure and the gas-seal technique of a fuel cell cel stack which the polyelectrolyte film was used.

[0002]

[Description of the Prior Art] The fuel cell cel stack using the conventional polyelectrolyte film A sealant 2 is allotted to the both sides of the anode side cel stack plate 1 as shown in drawing 4. Allot the anode charge collector 3 and the anode catalyst bed 4 in piles in the middle, and ion exchange membrane 5 is allotted on these. The sealant 6 was allotted to the both sides on it, the cathode catalyst bed 7 and the cathode charge collector 8 were arranged in piles in the middle, and it had become the configuration which arranged and carried out the laminating of the cathode side cel stack plate 9 on it further. In the fuel cell cel

stack of this configuration, catalyst beds 4 and 7 may sheet-size independently the case where what was formed and was unified on charge collectors 3 and 8 or ion exchange membrane 5 is used, and catalyst beds 4 and 7, and they may be used for them, and sealants 2 and 6 had the case where the case where an O ring is used, and flat packing were used. Moreover, the cel stack plates 1 and 9 did not penetrate gas, such as carbon or a metal, but formed the gas supply slot 10 and the gas manifold 11 using the ingredient with high electrical conductivity. In the conventional cel stack, although hundreds of layer laminating of the fuel cell cel stack was carried out and it was used from several layers according to the need electrical potential difference, since there were many components mark, it required time amount for exact positioning of a component part, and setting positive moreover was difficult for it at the time of a laminating. Generally, since a membranous mechanical strength becomes weak although internal resistance decreases and high power is obtained so that the thickness of the polyelectrolyte film (ion exchange membrane) is thin, the fuel cell using a polyelectrolyte is thickness. About 100 micrometers was made into the limitation. Moreover, when the pressurization pressure of gas was heightened, the output current increased, but with the structure of the conventional cel stack, when the pressurization pressure of gas was heightened, gas leaked from sealants 2 and 6 and there was a case where an output declined.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Then, this invention tends to offer the technique which can raise a mechanical strength also when thickness is thin, and the technique which the gas leak of the seal section is lost even if it pressurizes gas further, and can be improved in an output while it reduces the components mark when carrying out the laminating of the cel stack and can perform positive setting.

[0004]

[Means for Solving the Problem] The electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention for solving the above-mentioned technical problem with a sealant is unified so that a sealant may lap with the perimeter of the charge collector of 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector. This electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant may be fabricated so that the thickness of the gas supply side which is not covered with the sealant of a charge collector may be thick compared with surrounding thickness and may become convex. Moreover, the above-mentioned electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells with a sealant may be fabricated so that a part of thickness of a sealant may be thick compared with the thickness of the gas supply side of a charge collector and may become a concave at least. Furthermore, the hole for the manifolds for carrying out distribution supply of the gas and the hole for positioning at the time of a cel stack laminating may be formed in each above-mentioned electrode layer complex with a sealant. The sealant used for each above-mentioned electrode layer complex with a sealant may be a rubber-like elastic body or the rubber-like elastic body by which fiber strengthening was carried out, and a sealant may be a hard

macromolecule or the hard macromolecule (FRP) by which fiber strengthening was carried out. In the case of a hard sealant, it is desirable that the rubber-like elasticity object is formed in a part of the front face [at least]. After the manufacture approach of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant sandwiches 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector with the macromolecule sheet which has not carried out full hardening, it is characterized by performing unification shaping processing. There is a case of hardening processing in processing. Other one of the manufacture approaches of the electrode layer complex with a sealant of this invention is liquefied or a thing characterized by unifying with a sealant using sheet-like adhesives or a sealant about 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector. One of the manufacture approaches of the electrode layer complex with a sealant of this invention of further others is inserted in the metal mold which prepared the gap which pours in fluid-sealant material for 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector, and it is characterized by pouring in and hardening fluid-sealant material. In case the gas-seal approach of the polyelectrolyte mold fuel cell cel stack of this invention carries out the laminating of the 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector with the cel stack plate which has a gas supply slot, it is liquefied or a thing characterize by perform postcure processing which concluded the cel stack using sheet-like adhesives or a sealant, and increase and conclude a pressure further. Other one of the gas-seal approaches of the cel stack of the polyelectrolyte mold fuel cell of this invention is characterized by the thing of the part to which a cel stack plate contacts a sealant in the cel stack which carried out the laminating of the gas supply slot with the cel stack plate which it has in 5 layer structures which consist of an anode charge collector, an anode catalyst bed, ion exchange membrane, a cathode catalyst bed, and a cathode charge collector for which concave or a convex slot is formed in part at least. The polyelectrolyte mold fuel cell cel stack of this invention is the electrode layer complex with a sealant which has the hole for manifolds which carries out distribution supply of the gas, is the cel stack which consists of the electrode layer complex with a sealant with which the manifold which gas penetrates was formed in a part for the current-collection soma which does not lap with a sealant and ion exchange membrane, and the separator plate which has a hole for manifolds, and is characterized by to make the cross section of the charge collector thickness direction into the structure which gas passes.

[0005]

[Function] Since it unifies so that a sealant may lap with the perimeter of the charge collector of 5 layer structure, or the perimeter of a gas supply side side, the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of above-mentioned this invention with a sealant has a sealant separate from an electrode (a charge

collector and generic name of a catalyst bed) like before, and unlike anode gas and cathode gas having faced on both sides of ion exchange membrane, the both sides of anode gas and cathode gas do not contact ion exchange membrane and directly in the gap of a sealant and an electrode. In addition, although it is desirable to consider as the structure which sank in a sealant or adhesives into porous electrode structure with gas permeability as for the part to which an electrode laps with a sealant, it is also effective to have covered the surrounding front face the gas supply side side (a catalyst bed and opposite side) of a charge collector. Other one of the electrode layer complex with a sealant of this invention has the thick thickness of the gas supply side which is not covered with the sealant of a charge collector compared with surrounding thickness, and since it is fabricated so that it may become convex, it can decrease contact resistance, without increasing a component part. Namely, although a charge collector uses what carried out water-repellent treatment of the good carbon paper of gas permeability etc. Since there are many deformation amounts to the same stress compared with a sealant, contact pressure with the rib part of the cel stack plate which has a gas supply slot when current collection dignity and a sealing surface are the same is inadequate. Although a charge collector sheet can also increase contact pressure in piles further to the gas supply side of a charge collector in order to become the cause in which the increment in contact resistance causes the fall of output voltage and to prevent this, in this invention, contact resistance is decreased without increasing a component part, and the cause which causes the fall of output voltage can be canceled. At least, other one of the electrode layer complex with a sealant of this invention has a part of thick thickness of a sealant compared with the thickness of the gas supply side of a charge collector, and since it is fabricated so that it may become a concave that is, it can heighten the gas-seal effectiveness by using together what prepared the concave slot for a part of part in contact with the sealant of a cel stack plate which has a gas supply slot. This is because the same effectiveness as the case where the gas-seal effectiveness uses increase and an O ring can be acquired since the deformation of a sealant increases also when the bonding pressure force of the same cel stack is applied, since a part of thickness of a sealant is thick. Since the manifold hole for carrying out distribution supply of the gas and the hole for positioning at the time of a cel stack laminating are formed, other one of the electrode layer complex with a sealant of this invention can do assembly easily by carrying out a laminating to the order of an anode side cel stack plate, electrode layer complex with a sealant, and a cathode side cel stack plate by considering a guide rod as guidance in the case of cel stack assembly. Moreover, in case the laminating of the cel stack is carried out, when a cel stack is concluded in piles, using sheet-like adhesives or a sealant, after concluding a cel stack for sheet-like adhesives or a sealant in piles, using adhesives or a sealant, liquefied or the seal which does not have leak to a higher gas pressurization pressure is made by performing hardening processing, and increasing and concluding a pressure further. Very, according to the manufacture approach of each of said electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant, a sealant, an electrode, and the junction interface of ion exchange membrane unify, and the seal nature of gas is raised. Moreover, by

forming irregularity in the metal mold when unifying, irregularity can be formed in a charge collector or a sealant, or a manifold and the hole for positioning can also be formed in unification and coincidence. In case the electrode layer complex with a sealant which prepared such concave heights is used, the seal effectiveness is further heightened by preparing concave heights in a cel stack plate side.

[0006]

[Example] Drawing explains the example of this invention. a-d of drawing 1 is what shows various kinds of examples of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant. It allots so that a sealant 15 may lap with the perimeter of the charge collector of 5 layer structures which consist of the anode charge collector 3, the anode catalyst bed 4, ion exchange membrane 5, a cathode catalyst bed 7, and a cathode charge collector 8, respectively, or the perimeter by the side of gas supply. An electrode and ion exchange membrane 5 are unified by the sealant 15, and it considers as one member so that the gas of the both sides of anode gas and cathode gas may not contact ion exchange membrane 5 and directly by the sealant 15. a of drawing 1 is taken as the structure which sank in the sealant into the porous electrode structure which has gas permeability in the part 16 to which an electrode laps with a sealant 15. b of drawing 1 is only what covered the surrounding front face by the sealant 15 the gas supply side side (catalyst beds 4 and 7 and opposite side) of the anode charge collector 3 and the cathode charge collector 8. c of drawing 1 is fabricated so that the thickness of the gas supply side which is not covered with the sealant 15 of the anode charge collector 3 and the cathode charge collector 8 may become convex thickly compared with surrounding thickness. According to the electrode layer complex with a sealant of c of this drawing 1, contact resistance can be decreased, without increasing a component part. Namely, although charge collectors 3 and 8 use what carried out water-repellent treatment of the good carbon vapor of gas permeability etc. Since there are many deformation amounts to the same stress compared with a sealant 15, contact pressure with the rib part of the cel stack plate which has a gas supply slot when the field of charge collectors 3 and 8 and the field of a sealant 15 are the same is inadequate. In order to become the cause in which the increment in contact resistance causes the fall of output voltage and to prevent this, although contact pressure can also be increased in piles to the gas supply side of charge collectors 3 and 8, further a charge collector sheet In the electrode layer complex with a sealant of c of drawing 1, contact resistance is decreased without increasing a component part, and the cause which causes the fall of output voltage can be canceled. A part of thickness of a sealant 15 thickens d of drawing 1 compared with the thickness of the gas supply side of charge collectors 3 and 8 at least, and it is fabricated so that electrode layer complex with seal-like material may become a concave. By using for a part of part in contact with the sealant of a cel stack plate which has a gas supply slot together with the thing in which the concave slot was formed, this can heighten the gas-seal effectiveness. This is because the same effectiveness as the case where the gas-seal effectiveness uses increase and an O ring can be acquired since the deformation of a sealant 15 increases also when the bonding pressure force of the same cel stack is applied, since a part of thickness of a

sealant 15 is thick. Drawing 2 is what shows the solid polymer electrolyte mold fuel cell cel stack which enforced the gas-seal approach of this invention. a of drawing 2 by thickening the part of the gas supply slots 17 and 18 of the cel stack plates 1 and 9 Contact pressure with charge collectors 3 and 8 can be increased, and the gas-seal effectiveness can be heightened. By forming the convex projection 21 in a part of part in contact with the sealant 15 of the cel stack plates 1 and 9, b of drawing 2 can make a part with much deformation of a sealant 15, and can heighten the gas-seal effectiveness. As electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant The manifold hole 22 for carrying out distribution supply of the gas, as shown in drawing 3 . There is a thing in which the hole 23 for positioning at the time of a cel stack laminating was formed, and according to this, a guide rod is guided in the case of cel stack assembly. Assembly can be easily done by carrying out the laminating of this to the order of an anode side cel stack plate, electrode layer complex with a sealant, and a cathode side cel stack plate. In addition, the part with which, as for the part of (b), a charge collector and a sealant lap, and the part of (b) are parts with which ion exchange membrane and a sealant lap among drawing 3 . After applying adhesives or liquefied rubber seal material and concluding a cel stack at the time of the laminating of the above-mentioned cel stack, the seal which does not have leak to a higher gas pressurization pressure is made by performing hardening processing, and increasing and concluding a pressure further. It is a rubber-like elastic body or the rubber-like elastic body by which fiber strengthening was carried out, synthetic rubber, those copolymers, and natural rubber, such as a fluororubber, silicone rubber, styrene butadiene rubber, butyl polyurethane rubber, epichlorohydrin rubber, and acrylic rubber, are used, and one of the sealants used for the electrode layer complex for solid polymer electrolyte mold fuel cells with a sealant by this invention uses that by which fiber strengthening was carried out, when rubber needs to flow and it is necessary to prolonged use to prevent. Other one of the sealants is a hard macromolecule or the hard macromolecule by which fiber strengthening was carried out. The polyamide of aromatic series, aliphatic series, or an alicycle system, polyester, polyimide, A polyether, a polyether ketone, Pori Sall John, or an epoxy resin, A polycarbonate, phenol resin, a urea-resin, melamine resin, a fluororesin, etc., When a thermally stable polymer 80 degrees C or more is used and a crystalline macromolecule or second order transition temperature with a high elastic modulus needs to prevent change of a thickness dimension to prolonged use, that by which fiber strengthening was carried out is used. As fiber for strengthening the two above-mentioned kinds of sealants, what was woven using the ingredient chosen from glass, carbon, the ceramic, the macromolecule, and the natural material to the shape of a whisker, the thing made fibrous, the thing which sheet-sized them in the shape of paper, or blanket-like is used. When using as a sealant a rubber-like elastic body or the rubber-like elastic body by which fiber strengthening was carried out, it is desirable to use it like the case where the O ring and flat packing of the conventional technique are used, specifying the bonding pressure force of a cel stack or the reduction of area of a sealant, and 10 – 100 kgf/cm² and the reduction of area are desirable [the bonding pressure force], in order that it may carry out a gas seal that it is 10 – 50% of range. Moreover, since

the gap between cel stack plates is regulated by the hard sealant when using as a sealant a hard macromolecule or the hard macromolecule by which fiber strengthening was carried out, the bonding pressure force can be set as arbitration in the range (as an example, the reduction of area of a sealant is 7% or less the case to bonding pressure force 30 kgf/cm²) which does not exceed the elasticity limit of a hard sealant. In this case, it is a rubber-like elasticity object with much deformation to a hard sealant front face. By forming beforehand, the blemish of the front face of a cel stack plate and the roughness of processing finishing can be absorbed, and the seal effectiveness can raise. a rubber-like elasticity object -- the bonding pressure force -- 30 kgf/cm² it is -- a case -- deformation -- 30% or more -- it is -- things -- desirable -- a front face -- hardening -- **** -- the ingredient of the shape of adhesive rubber can also be used. The concrete example of the manufacture approach of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant is explained. Nafion of proton form (Du Pont make) Thickness which pierced and processed the hole in which four manifold holes, the hole for positioning, and a 60mmx60mm charge collector are settled in 115 (ion exchange membrane) It sandwiched by the 200-micrometer epoxy prepreg containing glass fabrics. The layer which becomes one side of the carbon paper charge collector which furthermore carried out water-repellent treatment using PTFE from a Nafion resin object and Pt support catalyst is formed, and they are 58mmx58mm and thickness. The 400-micrometer anode and the cathode electrode were obtained, and it inserted in the 60mmx60mm frame of the both sides of previous sandwich structure. thickness which pierced and processed the 50mmx50mm hole so that it might lap with four manifold holes which prepared this separately, the hole for positioning, and the perimeter of an electrode it sandwiches by the 200-micrometer epoxy prepreg containing glass -- the hotpress was performed and was really fabricated at 130 degree C. Under the present circumstances, it prevents that prepare the roll off of a 50mmx50mm dimension in the center at the used metal mold, and an electrode center section is compressed, and is the seal section. 800 micrometers, electrode center section 940-micrometer electrode layer complex with a sealant was obtained. After, on the other hand, met the anode with a thickness of 3mm and the cel stack plate for cathodes which have a gas manifold and a gas supply slot in liquefied silicone rubber adhesives, meeting the guide rod for positioning in electrode layer complex with a sealant, doubling with each cel stack plate, pressing by the pressure of 80 degrees C and 1t (15 kgf/cm²) and adhesives' hardening, it concluded with the conclusion plate and bolt made from stainless steel. It is the bonding pressure force in this case 25 kgf/cm² In order to maintain, coiled spring was minded, and the conclusion plate was compressed and concluded. They are 3 kgf/cm² at gage pressure to this polyelectrolyte fuel cell cel stack. N2 The place and gas leak which inspected the existence of the gas leak by the side of a sink and the electrode of another side to one electrode side were not seen in gas. Moreover, H2 And O2 The place which measured the electrical potential difference at the time of circuit opening (O, C, V), and 1060mV were shown using gas, and it checked that there was no gas leak. In addition, after carrying out thermocompression bonding of thermoplasticity, for example, the ion exchange membrane and the sealant of

fluorine form, and joining as a way method for improving further the junction force of the ion exchange membrane of electrode layer complex with a sealant, and a sealant interface, it is also convertible for proton form by performing hydrolysis processing.

[0007]

[Effect of the Invention] Also when according to this invention components mark decrease remarkably, and the assembly of a fuel cell cel stack becomes easy and the ion exchange membrane of a thin film is used, pressurization operation can be performed, moreover, a gas seal can be done in a perfect thing so that it may understand by the above explanation, and an output can be improved.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPD are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] a-d is drawing showing various kinds of examples of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant.

[Drawing 2] a and b are drawings showing the polyelectrolyte mold fuel cell cel stack which carried out the gas-seal material of this invention.

[Drawing 3] It is the top view of one example of the electrode layer complex for polyelectrolyte mold fuel cells of this invention with a sealant.

[Drawing 4] It is drawing showing the fuel cell cel stack using the conventional polyelectrolyte film.

[Description of Notations]

- 1 Anode Side Cel Tuck Plate
- 3 Anode Charge Collector
- 4 Anode Catalyst Bed
- 5 Ion Exchange Membrane
- 7 Cathode Catalyst Bed
- 8 Cathode Charge Collector
- 15 Sealant
- 17 Gas Supply Layer
- 18 Gas Supply Layer
- 19 Rib

20 Rib
21 Projection
22 Manifold Hole
23 Hole for Positioning

[Translation done.]

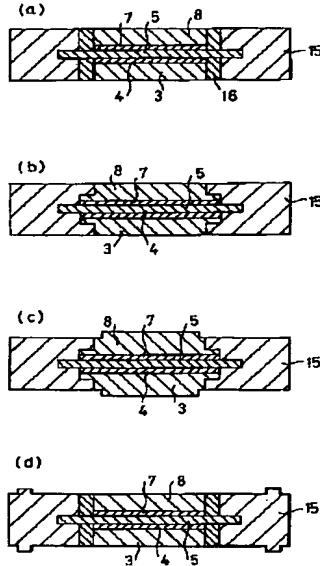
* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

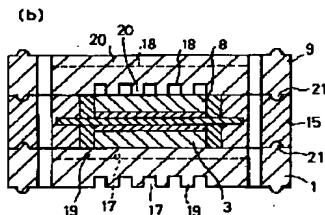
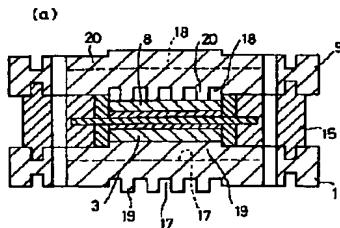
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. *** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

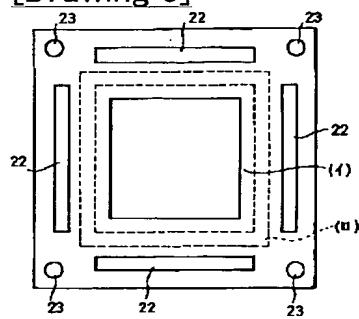
[Drawing 1]



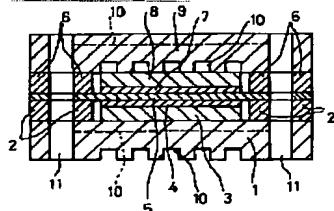
[Drawing 2]



[Drawing 3]



[Drawing 4]



[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12)公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-45517

(43)公開日 平成8年(1996)2月16日

(51) Int.CI.⁶
H01M 8/02識別記号
E 9444-4K
S 9444-4K
8/10

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数13 FD (全10頁)

(21)出願番号 特願平6-195965

(22)出願日 平成6年(1994)7月28日

(71)出願人 000217228

田中貴金属工業株式会社

東京都中央区日本橋茅場町2丁目6番6号

(72)発明者 坂入 弘一

神奈川県平塚市新町2番73号 田中貴金属
工業株式会社技術開発センター内

(72)発明者 多田 智之

神奈川県平塚市新町2番73号 田中貴金属
工業株式会社技術開発センター内

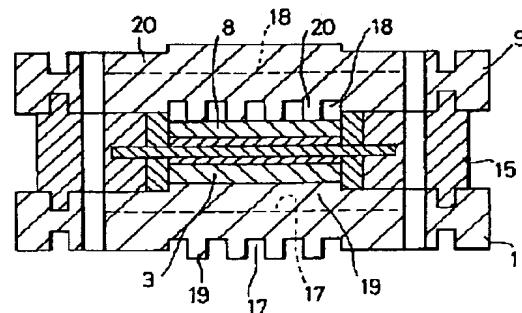
(54)【発明の名称】高分子電解質型燃料電池用シール構造及びその製造方法

(57)【要約】

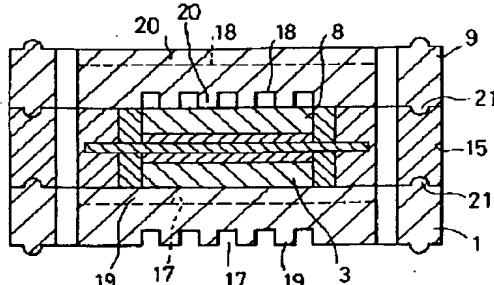
【目的】セルスタックを積層する時の部品点数を減らし、確実なセッティングができると共に、膜厚が薄い場合にも機械的強度を高めることができ、さらにガスを加圧してもシール部のガスリークを無くし、出力を向上することのできる高分子固体電解質型燃料電池用シール構造とその製造方法を提供する。

【構成】アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体より成る5層構造の集電体の表面周囲に、シール材が重なるように一体化されたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、液状あるいはシート状のシール材を用いてシール材と共に一体化することを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法。

(a)



(b)



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体よりなる5層構造の集電体の周囲に、シール材が重なるように一体化されたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項2】 請求項1記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが、周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項3】 請求項1記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、少なくともシール材の一部分の厚さが、集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項4】 請求項1又は2若しくは3記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、ガスを分配供給するためのマニホールド穴と、セルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項5】 請求項1、2、3又は4のいずれかに記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、シール材が、ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体であることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項6】 請求項1、2、3又は4のいずれかに記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、シール材が、硬質の高分子又は繊維強化された高分子であることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項7】 請求項6記載の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に於いて、硬質のシール材の表面の少なくとも一部分に、ゴム状弾性体が形成されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体。

【請求項8】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、完全硬化していない高分子シートで挟んだ後、一体化成形処理を施すことを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法。

【請求項9】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いてシール材と共に一体化することを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法。

【請求項10】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、液状シール材を注入する間隙を設けた金型に挟み込み、液状シール材を注入、硬化することを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法。

【請求項11】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層する際、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いて、セルスタックを締結した後硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法。

【請求項12】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層したセルスタックに於いて、セルスタックプレートがシール材と接触する部分の少なくとも一部に凹又は凸状の溝を形成することを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法。

【請求項13】 ガスを分配供給するマニホールド穴を有するシール材付電極膜複合体であってシール材及びイオン交換膜と重ならない集電体部分にガスが透過するマニホールドが形成されたシール材付電極膜複合体と、マニホールド穴を有するセパレータープレートより成るセルスタックであって、集電体厚さ方向の断面をガスが通過する構造としたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタック。

30 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックの構造及びガスシール技術に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来の高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックは、図4に示すようにアノード側セルスタックプレート1の両側にシール材2を配し、中間にアノード集電体3とアノード触媒層4を重ねて配し、これらの上にイオン交換膜5を配し、その上の両側にシール材6を配し、中間にカソード触媒層7とカソード集電体8を重ねて配し、さらにその上にカソード側セルスタックプレート9を配して積層した構成となっていた。かかる構成の燃料電池セルスタックに於いて、触媒層4、7は、集電体3、8又はイオン交換膜5上に形成されて一体化されたものを用いる場合と、触媒層4、7を単独でシート化して用いる場合があり、シール材2、6はOリングを用いる場合とフラットパッキンを用いる場合があった。また、セルスタックプレート1、9は、カーボン又は金属等ガスを透過せず、電気伝導度の高い材料を用

40

いてガス供給溝10とガスマニホールド11を形成したものであった。燃料電池セルスタックは、必要電圧に応じて数層から数百層積層して用いるが、従来のセルスタックでは積層時に部品点数が多い為、構成部品の正確な位置決めに時間がかかり、しかも確実なセッティングが困難であった。一般に、高分子電解質を用いた燃料電池は、高分子電解質膜（イオン交換膜）の厚みが薄い程、内部抵抗が減少し、高出力が得られるが、膜の機械的強度が弱くなる為に、膜厚は100μm程度が限界とされていた。また、ガスの加圧圧力を高めると、出力電流が増加するが、従来のセルスタックの構造では、ガスの加圧圧力を高めた場合、シール材2、6からガスがリークし、出力が低下する場合があった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】そこで本発明は、セルスタックを積層する時の部品点数を減らし、確実なセッティングができると共に、膜厚が薄い場合にも機械的強度を高めることのできる技術と、さらにガスを加圧してもシール部のガスリークを無くし、出力を向上することが可能な技術を提供しようとするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体より成る5層構造の集電体の周囲に、シール材が重なるように一体化したものである。この高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体は、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが、周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されている場合がある。また、上記高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体は、少なくともシール材の一部分の厚さが、集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されている場合がある。さらに、上記各シール材付電極膜複合体には、ガスを分配供給するためのマニホールド用の穴と、セルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されている場合がある。上記各シール材付電極膜複合体に用いるシール材は、ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体である場合があり、また、シール材が硬質の高分子又は繊維強化された高分子（FRP）である場合がある。硬質のシール材の場合、その表面の少なくとも一部分に、ゴム状弾性体が形成されていることが好ましい。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を完全硬化していない高分子シートで挟んだ後、一体化成形処理を施すことを特徴とするものである。処理には硬化処理の場合がある。本発明のシール材付電極膜複合体の製造方法の他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、

カソード集電体から成る5層構造を、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いてシール材と共に一体化することを特徴とするものである。本発明のシール材付電極膜複合体の製造方法のさらに他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体より成る5層構造を、液状シール材を注入する間隙を設けた金型に挿み込み、液状シール材を注入、硬化することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層する際、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いて、セルスタックを締結した後硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池のセルスタックのガスシール方法の他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層したセルスタックに於いて、セルスタックプレートがシール材と接触する部分の少なくとも一部に凹又は凸状の溝を形成することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池セルスタックは、ガスを分配供給するマニホールド用の穴を有するシール材付電極膜複合体であってシール材及びイオン交換膜と重ならない集電体部分にガスが透過するマニホールドが形成されたシール材付電極膜複合体と、マニホールド用の穴を有するセパレータープレートより成るセルスタックであって、集電体厚さ方向の断面をガスが通過する構造としたことを特徴とするものである。

【0005】

【作用】前述の本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体は、5層構造の集電体の周囲或いはガス供給面側周囲に、シール材が重なるように一体化したものであるから、従来のようにシール材が電極（集電体と触媒層の総称）と別個で、シール材と電極の間隙ではアノードガスとカソードガスがイオン交換膜を挟んで相対していたのとは異なり、アノードガスとカソードガスの双方がイオン交換膜と直接接觸する事がない。尚、シール材と電極の重なる部分は、ガス透過性のあるポーラスな電極構造中にシール材あるいは接着剤を含浸した構造とすることが好ましいが、集電体のガス供給面側（触媒層と反対側）周囲の表面を覆っているだけでも効果がある。本発明のシール材付電極膜複合体の他の1つは、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されているので、構成部品を増やさずに接觸抵抗を減少することができる。即ち、集電体はガス透過性の良いカーボンペーパー等を撥水化処理したものを用いるが、シール材に比べ同じ応力に対する歪量が多い為、集電体面

とシール面が同一の場合にはガス供給溝を有するセルスタックプレートのリブ部分との接触圧が不十分で、接触抵抗の増加が出力電圧の低下を招く原因となる場合があり、これを防ぐ為に集電体のガス供給面にさらに集電体シートを重ねて接触圧を増大させることもできるが、本発明では構成部品を増やすずに接触抵抗を減少し、出力電圧の低下を招く原因を解消できる。本発明のシール材付電極膜複合体の他の1つは、少なくともシール材の一部分の厚さが集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されたものであるから、つまりガス供給溝を有するセルスタックプレートのシール材と接触する部分の一部に凹状の溝を設けたものを一緒に用いることによって、ガスシール効果を高めることができるものである。これはシール材の一部の厚さが厚い為に同じセルスタックの締結圧力を加えた場合にもシール材の変形量が多くなる為、ガスシール効果が増し、Oリングを用いた場合と同様の効果を得ることができるからである。本発明のシール材付電極膜複合体の他の1つは、ガスを分配供給するためのマニホールド穴とセルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されているので、セルスタック組立の際にガイド棒を案内としてアノード側セルスタックプレート、シール材付電極膜複合体、カソード側セルスタックプレートの順に積層することによって容易に組立ができる。また、セルスタックを積層する際、液状あるいはシート状の接着剤またはシール材を用いて、又は重ねてセルスタックを締結した際、接着剤またはシール材を用いて、あるいはシート状の接着剤またはシール材を重ねてセルスタックを締結した後、硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することによって、より高いガス加圧圧力に対してもリークのないシールができる。然して本発明の前記各高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法によれば、シール材と電極及びイオン交換膜の接合界面が一体化して、ガスのシール性が高められている。また、一体化する時の金型に凹凸を形成することにより、集電体若しくはシール材に凹凸を形成したり、マニホールド及び位置決め用の穴を一体化と同時に形成することもできる。このような凹凸部を設けたシール材付電極膜複合体を使用する際、セルスタックプレート側に凹凸部を設けることによって、さらにシール効果が高められる。

【0006】

【実施例】本発明の実施例を図によって説明する。図1のa～dは本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の各種の実施例を示すもので、夫々アノード集電体3、アノード触媒層4、イオン交換膜5、カソード触媒層7、カソード集電体8よりなる5層構造の集電体の周囲或いはガス供給側の周囲にシール材15が重なるように配したものであって、シール材15によりアノードガスとカソードガスの双方のガスがイオン交換膜5と直接接触することのないように、且つ電極及びイオン

交換膜5をシール材15により一体化して1つの部材としたものである。図1のaは、シール材15と電極の重なる部分16を、ガス透過性のあるポーラスな電極構造中にシール材を含浸した構造としたものである。図1のbは、アノード集電体3、カソード集電体8のガス供給面側（触媒層4、7と反対側）周囲の表面をシール材15で覆っただけのものである。図1のcは、アノード集電体3、カソード集電体8のシール材15に覆われていないガス供給面の厚さが周囲の厚さに比べて厚く凸状になるよう成形したものである。この図1のcのシール材付電極膜複合体によれば、構成部品を増やすずに接触抵抗を減少できる。即ち、集電体3、8はガス透過性の良いカーボンベーパー等を撥水化処理したものを用いるが、シール材15に比べ同じ応力に対する歪量が多い為、集電体3、8の面とシール材15の面が同一の場合にはガス供給溝を有するセルスタックプレートのリブ部分との接触圧が不十分で、接触抵抗の増加が出力電圧の低下を招く原因となる場合があり、これを防ぐ為に集電体3、8のガス供給面にさらに集電体シートを重ねて接触圧を増大させることもできるが、図1のcのシール材付電極膜複合体では、構成部品を増やすずに接触抵抗を減少し、出力電圧の低下を招く原因を解消できる。図1のdは、少なくともシール材15の一部分の厚さが集電体3、8のガス供給面の厚さに比べて厚くし、シール状材付電極膜複合体が凹状になるように成形したものである。これはガス供給溝を有するセルスタックプレートのシール材と接触する部分の一部に凹状の溝を形成したものと一緒に用いることによって、ガスシール効果を高めることができる。これはシール材15の一部の厚さが厚い為に同じセルスタックの締結圧力を加えた場合にもシール材15の変形量が多くなる為、ガスシール効果が増し、Oリングを用いた場合と同様の効果を得ることができるからである。図2は本発明のガスシール方法を実施した高分子固体電解質型燃料電池セルスタックを示すもので、図2のaはセルスタックプレート1、9のガス供給溝17、18の部分を厚くすることによって、集電体3、8との接触圧力を増加することができ、ガスシール効果を高めることができたものであり、図2のbはセルスタックプレート1、9のシール材15と接触する部分の一部に凸状の突起21を形成することによってシール材15の変形量の多い部分を作り、ガスシール効果を高めることができたものである。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体としては、図3に示すようにガスを分配供給するためのマニホールド穴22と、セルスタック積層時の位置決め用の穴23を形成したものがあり、これによるとセルスタック組立の際にガイド棒を案内して、これをアノード側セルスタックプレート、シール材付電極膜複合体、カソード側セルスタックプレートの順に積層することによって容易に組立ができる。尚、図3中、(イ)の部分は集電体とシール材の重なる部分、(ロ)の部分は

イオン交換膜とシール材の重なる部分である。上記セルスタックの積層時、接着剤または液状ゴムシール材を塗布し、セルスタックを締結した後、硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することによって、より高いガス加圧圧力に対してもリークの無いシールができる。本発明による高分子固体電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体に用いるシール材の1つは、ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体であって、フッ素ゴム、シリコンゴム、ステレンブタジエンゴム、ブチルウレタンゴム、エピクロロヒドリンゴム、アクリルゴム等の合成ゴムとそれらの共重合体及び天然ゴムが用いられ、長期間の使用に対し、ゴムの流れ防止する必要がある場合には繊維強化されたものを用いる。シール材の他の1つは、硬質の高分子又は繊維強化された高分子であって、芳香族、脂肪族、または脂環系のポリアミド、ポリエステル、ポリイミド、ポリエーテル、ポリエーテルケトン、ポリサルフォン、若しくはエボキシ樹脂、ポリカーボネート、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、フッ素樹脂等、弾性率の高い結晶性の高分子または二次転移温度が80°C以上の耐熱性高分子が用いられ、長期間の使用に対して厚さ寸法の変化を防止する必要がある場合には、繊維強化されたものを用いる。上記2種類のシール材を強化する為の繊維としては、ガラス、炭素、セラミック、高分子、天然素材より選択された材料を用いてウィスカ一状若しくは繊維状にしたものや、それらを紙状にシート化したものや布状に織ったものが用いられる。ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体をシール材として使用する場合、従来技術のOリングやフラットパッキンを使用する場合と同様にセルスタックの締結圧力、若しくはシール材の変形率を規定して使用することが好ましく、締結圧力は10~100kgf/cm²、変形率は10~50%の範囲であることがガスシールをする為に好ましい。また、硬質の高分子又は繊維強化された高分子をシール材として使用する場合、硬質のシール材によってセルスタックプレート間のギャップが規制される為、硬質シール材の弾性限界を超えない範囲（一例として、締結圧力30kgf/cm²までの場合、シール材の変形率が7%以下）で、締結圧力を任意に設定することができる。この際に硬質のシール材表面に変形量の多いゴム状弾性体を予め形成しておくことによって、セルスタックプレートの表面の傷や加工仕上げの荒さを吸収できて、シール効果が高めることができる。ゴム状弾性体は締結圧力が30kgf/cm²の場合、変形量が30%以上であることが好ましく、表面が硬化していない粘着性のゴム状の材料を用いることもできる。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の製造方法の具体的な実施例を説明する。プロトンフォーム（デュポン社製）のナフィオン115（イオン交換膜）を4個のマニホールド穴と位置決め用の穴、及び60mm×60mmの集電体が収まる穴を打抜き加工した厚さ200μmのガラスクロス

入りエポキシプリプレグでサンドイッチした。さらにPTFEを用いて撥水化処理したカーボンペーパー集電体の片面にナフィオン樹脂体とPt担持触媒よりなる層を形成し、58mm×58mm、厚さ400μmのアノード及びカソード電極を得て、先のサンドイッチ構造の両側の60mm×60mmの枠に嵌め込んだ。これを別途用意した4個のマニホールド穴と位置決め用の穴、及び電極周囲と重なるよう40mm×50mmの穴を打抜き加工した厚さ200μmのガラス入りエポキシプリプレグでサンドイッチして、130°Cでホットプレスを行い一体成形した。この際用いた金型には中央に50mm×50mmの寸法の逃げ部を設け電極中央部が圧縮されるのを防止し、シール部800μm、電極中央部940μmのシール材付電極膜複合体を得た。一方、ガスマニホールドとガス供給溝を有する厚さ3mmのアノード及びカソード用セルスタックプレートに、液状シリコンゴム接着剤を、シール材付電極膜複合体を位置決め用ガイド棒に沿って各セルスタックプレートと共に合わせ、80°C、1トン(15kgf/cm²)の圧力でプレスし、接着剤が硬化した後、ステンレス製の締結プレートとボルトで締結した。この際の締結圧力を25kgf/cm²に保つ為、コイルばねを介して締結プレートを圧縮、締結した。この高分子電解質燃料電池セルスタックにゲージ圧で3kgf/cm²のN₂ガスを一方の電極側に流し、他方の電極側へのガスリークの有無を検査した処、ガスリークは見られなかった。またH₂及びO₂ガスを用いて、回路開放時の電圧(O、C、V)を測定した処、1060mVを示し、ガスリークの無いことを確認した。尚、シール材付電極膜複合体のイオン交換膜とシール材界面の接着力をさらに向上するための一手法として、熱可塑性の、例えばフッ素フォームのイオン交換膜とシール材を熱圧着して接合した後に、加水分解処理を施すことによってプロトンフォームに変換することもできる。

【0007】

【発明の効果】以上の説明で判るように本発明によれば、部品点数が著しく少なくなつて燃料電池セルスタックのアッセンブリーが容易となり、また薄膜のイオン交換膜を用いた場合にも加圧運転ができ、しかもガスシールを完全なものにでき、出力を向上することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】a~dは本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の各種の実施例を示す図である。

【図2】a、bは本発明のガスシール材を実施した高分子電解質型燃料電池セルスタックを示す図である。

【図3】本発明の高分子電解質型燃料電池用シール材付電極膜複合体の一実施例の平面図である。

【図4】従来の高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックを示す図である。

【符号の説明】

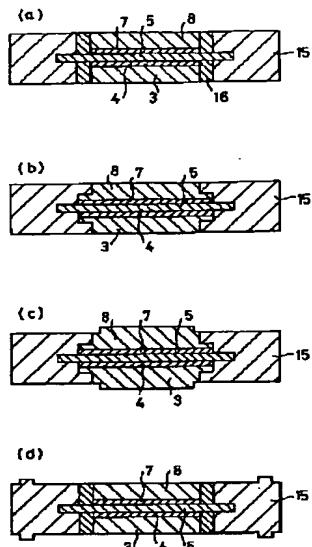
1 アノード側セルスタックプレート

3 アノード集電体

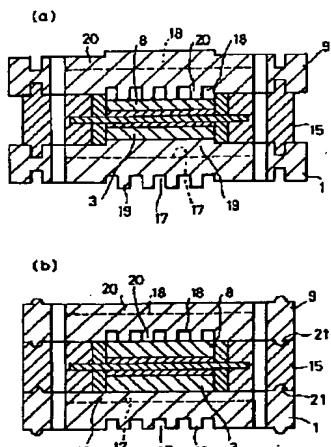
4 アノード触媒層
5 イオン交換膜
7 カソード触媒層
8 カソード集電体
15 シール材
17 ガス供給層

18 ガス供給層
19 リブ
20 リブ
21 突起
22 マニホールド穴
23 位置決め用の穴

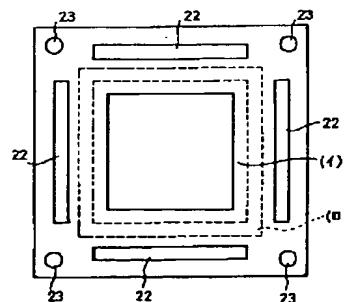
【図 1】



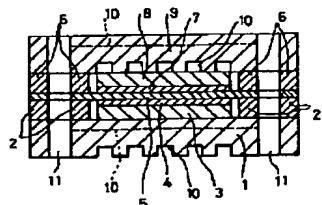
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【手続補正書】

【提出日】 平成 7 年 6 月 23 日

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 全文

【補正方法】 変更

【補正内容】

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池用シール構造
及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体よりなる 5

層構造の集電体の周囲に、シール材が重なるように一体化されたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項 2】 請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが、周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項 3】 請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、少なくともシール材の一部分の厚さが、集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されていることを特徴とする高分子電

解質型燃料電池用シール構造。

【請求項4】 請求項1又は2若しくは3記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、ガスを分配供給するためのマニホールド穴と、セルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項5】 請求項1、2、3又は4のいずれかに記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、シール材が、ゴム状の弾性体又は纖維強化されたゴム状の弾性体であることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項6】 請求項1、2、3又は4のいずれかに記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、シール材が、硬質の高分子又は纖維強化された高分子であることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項7】 請求項6記載の高分子電解質型燃料電池用シール構造に於いて、硬質のシール材の表面の少なくとも一部分に、ゴム状弾性体が形成されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造。

【請求項8】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、完全硬化していない高分子シートで挟んだ後、一体化成形処理を施すことを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法。

【請求項9】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いてシール材と共に一体化することを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法。

【請求項10】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、液状シール材を注入する間隙を設けた金型に挟み込み、液状シール材を注入、硬化することを特徴とする高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法。

【請求項11】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層する際、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いて、セルスタックを締結した後硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法。

【請求項12】 アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体からなる5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層したセルスタックに於いて、セルスタックプレートがシール材と接触する部分の少なくとも一部に凹又は凸状の溝を形成することを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法。

【請求項13】 ガスを分配供給するマニホールド穴を有するシール構造であってシール材及びイオン交換膜と重ならない集電体部分にガスが透過するマニホールドが形成されたシール構造と、マニホールド穴を有するセパレータープレートより成るセルスタックであって、集電体厚さ方向の断面をガスが通過する構造としたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池セルスタック。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックの構造及びガスシール技術に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来の高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックは、図4に示すようにアノード側セルスタックプレート1の両側にシール材2を配し、中間にアノード集電体3とアノード触媒層4を重ねて配し、これらの上にイオン交換膜5を配し、その上の両側にシール材6を配し、中間にカソード触媒層7とカソード集電体8を重ねて配し、さらにその上にカソード側セルスタックプレート9を配して積層した構成となっていた。かかる構成の燃料電池セルスタックに於いて、触媒層4、7は、集電体3、8又はイオン交換膜5上に形成されて一体化されたものを用いる場合と、触媒層4、7を単独でシート化して用いる場合があり、シール材2、6はOリングを用いる場合とフラットパッキンを用いる場合があった。また、セルスタックプレート1、9は、カーボン又は金属等ガスを透過せず、電気伝導度の高い材料を用いてガス供給溝10とガスマニホールド11を形成したものであった。燃料電池セルスタックは、必要電圧に応じて数層から数百層積層して用いるが、従来のセルスタックでは積層時に部品点数が多い為、構成部品の正確な位置決めに時間がかかり、しかも確実なセッティングが困難であった。一般に、高分子電解質を用いた燃料電池は、高分子電解質膜（イオン交換膜）の厚みが薄い程、内部抵抗が減少し、高出力が得られるが、膜の機械的強度が弱くなる為に、膜厚は100μm程度が限界とされていた。また、ガスの加圧圧力を高めると、出力電流が増加するが、従来のセルスタックの構造では、ガスの加圧圧力を高めた場合、シール材2、6からガスがリークし、出力が低下する場合があった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 そこで本発明は、セルスタックを積層する時の部品点数を減らし、確実なセッティングができると共に、膜厚が薄い場合にも機械的強度を高めることのできる技術と、さらにガスを加圧してもシール部のガスリークを無くし、出力を向上することが可能な技術を提供しようとするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するため

の本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体より成る5層構造の集電体の周囲に、シール材が重なるように一体化したものである。この高分子電解質型燃料電池用シール構造は、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが、周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されている場合がある。また、上記高分子電解質型燃料電池用シール構造は、少なくともシール材の一部分の厚さが、集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されている場合がある。さらに、上記各シール構造には、ガスを分配供給するためのマニホールド用の穴と、セルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されている場合がある。上記各シール構造に用いるシール材は、ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体である場合があり、また、シール材が硬質の高分子又は繊維強化された高分子(FRP)である場合がある。硬質のシール材の場合、その表面の少なくとも一部分に、ゴム状弾性体が形成されていることが好ましい。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を完全硬化していない高分子シートで挟んだ後、一体化成形処理を施すことを特徴とするものである。処理には硬化処理の場合がある。本発明のシール構造の製造方法の他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いてシール材と共に一体化することを特徴とするものである。本発明のシール構造の製造方法のさらに他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体より成る5層構造を、液状シール材を注入する間隙を設けた金型に挿み込み、液状シール材を注入、硬化することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池セルスタックのガスシール方法は、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層する際、液状あるいはシート状の接着剤又はシール材を用いて、セルスタックを締結した後硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池のセルスタックのガスシール方法の他の1つは、アノード集電体、アノード触媒層、イオン交換膜、カソード触媒層、カソード集電体から成る5層構造を、ガス供給溝を有するセルスタックプレートと共に積層したセルスタックに於いて、セルスタックプレートがシール材と接触する部分の少なくとも一部に凹又は凸状の溝を形成することを特徴とするものである。本発明の高分子電解質型燃料電池セルスタックは、ガスを分配供給するマニホール

ド用の穴を有するシール構造であってシール材及びイオン交換膜と重ならない集電体部分にガスが透過するマニホールドが形成されたシール構造と、マニホールド用の穴を有するセパレータープレートより成るセルスタックであって、集電体厚さ方向の断面をガスが通過する構造としたことを特徴とするものである。

【0005】

【作用】前述の本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造は、5層構造の集電体の周囲或いはガス供給面側周囲に、シール材が重なるように一体化したものであるから、従来のようにシール材が電極(集電体と触媒層の総称)と別個で、シール材と電極の間隙ではアノードガスとカソードガスがイオン交換膜を挟んで相対していたのとは異なり、アノードガスとカソードガスの双方がイオン交換膜と直接接觸することがない。尚、シール材と電極の重なる部分は、ガス透過性のあるポーラスな電極構造中にシール材あるいは接着剤を含浸した構造することが好ましいが、集電体のガス供給面側(触媒層と反対側)周囲の表面を覆っているだけでも効果がある。本発明のシール構造の他の1つは、集電体のシール材に覆われていないガス供給面の厚さが周囲の厚さに比べて厚く、凸状になるように成形されているので、構成部品を増やさずに接觸抵抗を減少することができる。即ち、集電体はガス透過性の良いカーボンペーパー等を撥水化処理したものを用いるが、シール材に比べ同じ応力に対する歪量が多い為、集電体面とシール面が同一の場合にはガス供給溝を有するセルスタックプレートのリブ部分との接觸圧が不十分で、接觸抵抗の増加が出力電圧の低下を招く原因となる場合があり、これを防ぐ為に集電体のガス供給面にさらに集電体シートを重ねて接觸圧を増大させることもできるが、本発明では構成部品を増やさずに接觸抵抗を減少し、出力電圧の低下を招く原因を解消できる。本発明のシール構造の他の1つは、少なくともシール材の一部分の厚さが集電体のガス供給面の厚さに比べて厚く、凹状になるように成形されたものであるから、つまりガス供給溝を有するセルスタックプレートのシール材と接觸する部分の一部に凹状の溝を設けたものを一緒に用いることによって、ガスシール効果を高めることができるものである。これはシール材の一部の厚さが厚い為に同じセルスタックの締結圧力を加えた場合にもシール材の変形量が多くなる為、ガスシール効果が増し、Oリングを用いた場合と同様の効果を得ることができるからである。本発明のシール構造の他の1つは、ガスを分配供給するためのマニホールド穴とセルスタック積層時の位置決め用の穴が形成されているので、セルスタック組立の際にガイド棒を案内としてアノード側セルスタックプレート、シール構造、カソード側セルスタックプレートの順に積層することによって容易に組立ができる。また、セルスタックを積層する際、液状あるいはシート状の接着剤またはシール材を用いて、又は重ねて

セルスタックを締結した際、接着剤またはシール材を用いて、あるいはシート状の接着剤またはシール材を重ねてセルスタックを締結した後、硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することによって、より高いガス加圧圧力に対してもリークのないシールができる。然して本発明の前記各高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法によれば、シール材と電極及びイオン交換膜の接合界面が一体化して、ガスのシール性が高められている。また、一体化する時の金型に凹凸を形成することにより、集電体若しくはシール材に凹凸を形成したり、マニホールド及び位置決め用の穴を一体化と同時に形成することもできる。このような凹凸部を設けたシール構造を使用する際、セルスタックプレート側に凹凸部を設けることによって、さらにシール効果が高められる。

【0006】

【実施例】本発明の実施例を図によって説明する。図1のa～dは本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造の各種の実施例を示すもので、夫々アノード集電体3、アノード触媒層4、イオン交換膜5、カソード触媒層7、カソード集電体8よりなる5層構造の集電体の周囲或いはガス供給側の周囲にシール材15が重なるように配したものであって、シール材15によりアノードガスとカソードガスの双方のガスがイオン交換膜5と直接接触することのないように、且つ電極及びイオン交換膜5をシール材15により一体化して1つの部材としたものである。図1のaは、シール材15と電極の重なる部分16を、ガス透過性のあるポーラスな電極構造中にシール材を含浸した構造としたものである。図1のbは、アノード集電体3、カソード集電体8のガス供給面側(触媒層4、7と反対側)周囲の表面をシール材15で覆っただけのものである。図1のcは、アノード集電体3、カソード集電体8のシール材15に覆われていないガス供給面の厚さが周囲の厚さに比べて厚く凸状になるように成形したものである。この図1のcのシール構造によれば、構成部品を増やさずに接触抵抗を減少できる。即ち、集電体3、8はガス透過性の良いカーボンベーパー等を撥水化処理したものを用いるが、シール材15に比べ同じ応力に対する歪量が多い為、集電体3、8の面とシール材15の面が同一の場合にはガス供給溝を有するセルスタックプレートのリブ部分との接触圧が不十分で、接触抵抗の増加が出力電圧の低下を招く原因となる場合があり、これを防ぐ為に集電体3、8のガス供給面にさらに集電体シートを重ねて接触圧を増大させることもできるが、図1のcのシール構造では、構成部品を増やさずに接触抵抗を減少し、出力電圧の低下を招く原因を解消できる。図1のdは、少なくともシール材15の一部分の厚さが集電体3、8のガス供給面の厚さに比べて厚くし、シール構造が凹状になるように成形したものである。これはガス供給溝を有するセルスタックプレートのシール材と接触する部分の一部に凹状の溝を形成したものと一緒に用い

ることによって、ガスシール効果を高めることができる。これはシール材15の一部の厚さが厚い為に同じセルスタックの締結圧力を加えた場合にもシール材15の変形量が多くなる為、ガスシール効果が増し、Oリングを用いた場合と同様の効果を得ることができるからである。図2は本発明のガスシール方法を実施した高分子固体電解質型燃料電池セルスタックを示すもので、図2のaはセルスタックプレート1、9のガス供給溝17、18の部分を厚くすることによって、集電体3、8との接触圧力を増加することができ、ガスシール効果を高めることができたものであり、図2のbはセルスタックプレート1、9のシール材15と接触する部分の一部に凸状の突起21を形成することによってシール材15の変形量の多い部分を作り、ガスシール効果を高めることができたものである。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造としては、図3に示すようにガスを分配供給するためのマニホールド穴22と、セルスタック積層時の位置決め用の穴23を形成したものがあり、これによるとセルスタック組立の際にガイド棒を案内して、これをアノード側セルスタックプレート、シール構造、カソード側セルスタックプレートの順に積層することによって容易に組立ができる。尚、図3中、(イ)の部分は集電体とシール材の重なる部分、(ロ)の部分はイオン交換膜とシール材の重なる部分である。上記セルスタックの積層時、接着剤または液状ゴムシール材を塗布し、セルスタックを締結した後、硬化処理を施し、さらに圧力を増加して締結することによって、より高いガス加圧圧力に対してもリークの無いシールができる。本発明による高分子固体電解質型燃料電池用シール構造に用いるシール材の1つは、ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体であって、フッ素ゴム、シリコンゴム、ステレンブタジエンゴム、ブチルウレタンゴム、エピクロロヒドリンゴム、アクリルゴム等の合成ゴムとそれらの共重合体及び天然ゴムが用いられ、長期間の使用に対し、ゴムの流れ防止する必要がある場合には繊維強化されたものを用いる。シール材の他の1つは、硬質の高分子又は繊維強化された高分子であって、芳香族、脂肪族、または脂環系のポリアミド、ポリエステル、ポリイミド、ポリエーテル、ポリエーテルケトン、ポリサルファン、若しくはエポキシ樹脂、ポリカーボネート、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、フッ素樹脂等、弾性率の高い結晶性の高分子または二次転移温度が80℃以上の耐熱性高分子が用いられ、長期間の使用に対して厚さ寸法の変化を防止する必要がある場合には、繊維強化されたものを用いる。上記2種類のシール材を強化する為の繊維としては、ガラス、炭素、セラミック、高分子、天然素材より選択された材料を用いてウィスカーサー状若しくは繊維状にしたものや、それらを紙状にシート化したものや布状に織ったものが用いられる。ゴム状の弾性体又は繊維強化されたゴム状の弾性体をシール材として使用する場合、従来技

術のOリングやフラットパッキンを使用する場合と同様にセルスタックの締結圧力、若しくはシール材の変形率を規定して使用することが好ましく、締結圧力は10～100kgf/cm²、変形率は10～50%の範囲であることがガスシールをする為に好ましい。また、硬質の高分子又は繊維強化された高分子をシール材として使用する場合、硬質のシール材によってセルスタックプレート間のギャップが規制される為、硬質シール材の弹性限界を超えない範囲（一例として、締結圧力30kgf/cm²までの場合、シール材の変形率が7%以下）で、締結圧力を任意に設定することができる。この際に硬質のシール材表面に変形量の多いゴム状弹性体を予め形成しておくことによって、セルスタックプレートの表面の傷や加工仕上げの荒さを吸収できて、シール効果が高めることができる。ゴム状弹性体は締結圧力が30kgf/cm²の場合、変形量が30%以上であることが好ましく、表面が硬化していない粘着性のゴム状の材料を用いることもできる。本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造の製造方法の具体的な実施例を説明する。プロトンフォーム（デュポン社製）のナフィオン 115（イオン交換膜）を4個のマニホールド穴と位置決め用の穴、及び60mm×60mmの集電体が収まる穴を打抜き加工した厚さ200μmのガラスクロス入りエポキシプリプレグでサンドイッチした。さらにPTFEを用いて撥水化処理したカーボンペーパー集電体の片面にナフィオン樹脂体とPTFE担持触媒よりなる層を形成し、58mm×58mm、厚さ400μmのアノード及びカソード電極を得て、先のサンドイッチ構造の両側の60mm×60mmの枠に嵌め込んだ。これを別途用意した4個のマニホールド穴と位置決め用の穴、及び電極周囲と重なるよう50mm×50mmの穴を打抜き加工した厚さ200μmのガラス入りエポキシプリプレグでサンドイッチして、130℃でホットプレスを行い一体成形した。この際用いた金型には中央に50mm×50mmの寸法の逃げ部を設け電極中央部が圧縮されるのを防止し、シール部800μm、電極中央部940μmのシール構造を得た。一方、ガスマニホールドとガス供給溝を有する厚さ3mmのアノード及びカソード用セルスタックプレートに、液状シリコンゴム接着剤を、シール構造を位置決め用ガイド棒に沿って各セルスタックプレートと共に合わせ、80℃、1トン(15kgf/cm²)の圧力でプレスし、接着剤が硬化した後、ステンレス製の締結プレートとボルトで締結した。この際の締結圧力を25kgf/cm²に保つ為、コイルばねを介して締結

プレートを圧縮、締結した。この高分子電解質燃料電池セルスタックにゲージ圧で3kgf/cm²のN₂ガスを一方の電極側に流し、他方の電極側へのガスリークの有無を検査した所、ガスリークは見られなかった。またH₂及びO₂ガスを用いて、回路開放時の電圧(O、C、V)を測定した所、1060mVを示し、ガスリークの無いことを確認した。尚、シール構造のイオン交換膜とシール材界面の接着力をさらに向上するための一手法として、熱可塑性の、例えばフッ素フォームのイオン交換膜とシール材を熱圧着して接合した後に、加水分解処理を施すことによってプロトンフォームに変換することもできる。

【0007】

【発明の効果】 以上の説明で判るように本発明によれば、部品点数が著しく少なくて燃料電池セルスタックのアッセンブリーが容易となり、また薄膜のイオン交換膜を用いた場合にも加圧運転ができ、しかもガスシールを完全なものにでき、出力を向上することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 a～dは本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造の各種の実施例を示す図である。

【図2】 a、bは本発明のガスシール材を実施した高分子電解質型燃料電池セルスタックを示す図である。

【図3】 本発明の高分子電解質型燃料電池用シール構造の一実施例の平面図である。

【図4】 従来の高分子電解質膜を用いた燃料電池セルスタックを示す図である。

【符号の説明】

- 1 アノード側セルスタックプレート
- 3 アノード集電体
- 4 アノード触媒層
- 5 イオン交換膜
- 7 カソード触媒層
- 8 カソード集電体
- 15 シール材
- 17 ガス供給層
- 18 ガス供給層
- 19 リブ
- 20 リブ
- 21 突起
- 22 マニホールド穴
- 23 位置決め用の穴